

근접장 마이크로파 현미경을 이용한 ITO박막의 표면저항의 비파괴 관측 특성 연구

윤순일, 나승욱, 유현준, 이영주, 김현정, 이기진 *
서강대학교 물리학과

Nondestructive measurement of surface resistance of indium tin oxide(ITO) films by using a near-field scanning microwave microscope

Soonil Yun, Sungwuk Na, Hyunjun You, Yeongjoo Lee, Hyunjung Kim, Kiejin Lee
Department of Physics, Sogang University

Abstract

저항특성이 다른 ITO박막의 구조특성과 표면특성을 XRD와 AFM(atomic force microscopy), SEM(scanning electron microscopy)을 이용하여 관측하였다. 접촉방식인 4단자 법을 사용하여 ITO박막의 표면전기저항을 측정하였다. 관측된 구조 및 표면특성을 바탕으로 비파괴·비접촉방식을 이용한 근접장 마이크로파 현미경을 이용하여 얻은 ITO박막의 표면저항특성과 비교 연구하였다.

Key word : ITO (indium tin oxide), near-field scanning microwave microscope, OLED (organic light emitting diodes), S_{11} (reflective coefficient)

1. 서 론

Indium tin oxide(ITO)[1]는 가시광선 영역에서 매우 높은 광학적 투과특성과 적외선 영역에서의 높은 반사특성을 가진다. 낮은 전기적 저항을 갖는 특성을 갖고 있어 전자공학(electronic), 광전자공학(optoelectronic), 액정표시장치(liquid crystal display), plasma display panel(PDPs), 태양전지(solar cells) 같은 응용분야에서 기판으로서 오래 전부터 사용되고 연구되어 왔다. 특히, flat panel display의 분야에서 유기발광소자는[2] 디스플레이의 대면적화, 빠른 응답속도, 높은 색순도의 장점으로 인해 차세대 디스플레이분야에서 선두주자로 손꼽히고 있다. 유기 발광소자는 매우 높은 투명전도막(transparent conducting oxide) 표면의 편평함을 요구한다. 박막 표면의 거칠기는 전기적 광학적 특성에 의하여 영향을 주는 것으로 보고되고 있다 [3-4]. 유기발광소자의 유기물박막들의 균질성과 표면의 거칠기는 소자의 효율특성에 매우 중요한 요소로 작용한다. 발광소자의 전체 두께는 약 100 nm

정도이므로, 각층의 표면 거칠기는 매우 중요한 요소가 된다. 양극으로 사용되는 ITO의 표면 거칠기는 flat panel display의 공정과정중 patterning 과정에 많은 영향을 미치므로, 유기발광 소자의 효율을 결정짓는 중요한 요소가 된다.[5] ITO 박막제작은 RF magnetron sputtering, ion plating, pulse laser deposition, DC magnetron sputtering 등의 방법을 사용하여 제작되고 있으며, 제작 방법과 증착조건에 따라 ITO박막의 결정구조와 격자상수가 변하게 된다.[6-10] 본 논문에서는 각각 제작 방법과 증착 조건이 다른 ITO박막 (a), (b), (c)의 표면 전기저항을 측정하기 위하여, 접촉방식인 4단자법(four probe station)을 이용하여 표면저항을 측정하였고, x-ray diffraction (XRD), atomic force microscopy (AFM), scanning electron microscopy (SEM)를 이용하여 박막의 표면과, 결정성, 표면의 morphology와 구조적 특징을 살펴보았다. ITO박막의 전기 전도도를 측정하기 위하여 비파괴, 비접촉방식의 근접장 마이크로파 현미경(near field scanning microwave microscope : NSMM)[11-16]을 이용하

여 표면의 전기적 저항을 관측하였다. SEM(scanning electron microscope)이나 전자의 양자적 터널링을 이용한 STM(scanning tunneling microscope)은 미세표면 구조 관찰에 이용되고 있지만, 시료의 전자기적 구조를 분석할 수 없는 단점을 가지고 있다. 그러나 NSMM은 도체, 반도체, 유전체와 생물학적 시료의 표면구조 특성뿐 아니라 전자기적 구조 이미지가 얻을 수 있는 장점을 가지고 있다. 본 연구에서는 ITO 박막의 전기저항특성을 NSMM을 이용하여 측정하였고 ITO박막 (a), (b), (c)의 구조 및 표면 특성과 비교 연구하였다.

2. 실험

세 종류의 특성이 다른 ITO박막을 alcohol, acetone, distilled water의 순서로 각각 5분 동안 초음파 세척기를 이용하여 세척한 후, 질소가스를 사용하여 건조시켰다. 저항특성을 측정하기 위해 접촉방식인 semiconductor parameter analyzer (Aglient, 4156A)와 연결된 4단자 법을 이용하여 박막의 저항 값을 측정하였다. ITO박막의 구조적 특징과 결정성을 측정하기 위하여 에너지 분해능이 $\Delta\lambda/\lambda = 5 \times 10^{-5}$ 인 x-ray($\lambda = 1.5409 \text{ \AA}$)를 이용하여 x-ray 회절각을 측정하였다. 또한 ITO 박막의 표면 image와 grain size를 측정하기 위해 Field emission scanning electron microscopy (FESEM, S-4300, Hitachi)를 사용하였다. 박막 표면의 거칠기와 삼차원 이미지는 atomic force microscopy (AFM, D-3100, Veeco)를 사용하여 측정하였다. ITO박막의 전기전도도를 측정하기 위해 사용한 근접장 마이크로파 현미경에 대한 구조도를 그림1에 나타내었다. 공진 주파수는 약 5.7GHz를 갖는 유전체 공진기를 사용하였다. 유전체 공진기의 구조는 유전상수가 $\epsilon = 29$ 인 $Ba(ZrTa)O_3$ 가 실린더 모양의 공진기 안에 들어가 있으며, 유전체의 모양은 안쪽 원의 지름이 2 mm, 바깥쪽 지름이 14 mm, 높이가 5.8 mm의 구조를 갖고 있다. 유전체를 싸고있는 실린더 모양의 내부 cavity의 크기는 지름이 32 mm이며 높이가 14 mm의 구조를 갖고 있다. 얻어진 공진 주파수는 Network analyzer (Aglient, 8753ES)를 사용하여 측정하였다. 샘플과 tip은 정확히 수직을 유지하며, 그 사이의 거리는 x-y-z controller stage와 PZT tube를 이용하여 computer로 제어하면서 10 nm를 유지하며 박막의 전기전도도 값을 측정하였다.

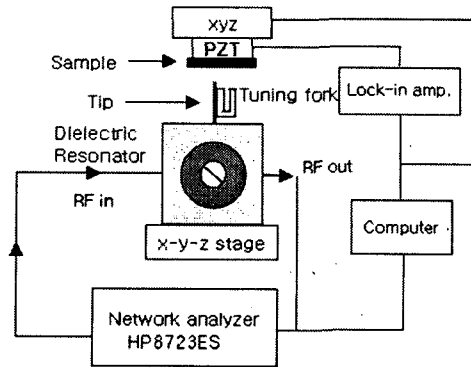


그림 1. 유전체 공진기를 사용한 실험 배열의 구조도
Fig 1. Diagram of the experimental configuration with a dielectric resonator

3 결과 및 고찰

박막의 결정성과 grain size는 박막의 표면저항을 결정짓는 중요한 요소임이 알려져 있다[17-18]. 박막의 저항과 결정성, 표면의 형태와의 관계를 알아보기 위하여 박막의 표면저항을 4단자 법으로 측정하였다. 각각 (a) $8 \Omega/cm^2$, (b) $12 \Omega/cm^2$, (c) $15 \Omega/cm^2$ 의 표면저항 값이 관측되었다. 각각의 ITO박막의 결정성을 조사하기 위하여 XRD를 측정하였다.

그림2에 세 종류의 표면특성이 다른 두께 1500 Å ITO박막의 XRD pattern을 나타내었다. (211), (222), (400), (440), (622)의 peak이 각각 2θ 가 21° , 30.5° , 35° , 50° , 60° 에 나타났다. 세 가지 ITO박막 모두 In_2O_3 의 (222) peak와 (400) peak의 intensity가 가장 강하게 나타났으며, 같은 peak위치에서 서로 다른 intensity를 나타냈다. (222), (400) peak intensity는 시료 (a)가 가장 크고, 시료(c)의 (400) peak intensity가 상대적으로 가장 약하게 관측되었다. Fullwidth half maximum(FWHM)의 값이 각각 시료 (a)-(b)-(c) 순서로 (222) peak이 0.25, 0.45, 0.5로 (400) peak이 0.19, 0.2, 0.45로 증가하였고. (400)/(222)의 intensity ratio의 값은 1.087, 0.873, 0.278로 감소하였다. 시료 (b)와(c)의 XRD pattern의 (222), (400) peak이 두 가지 peak로 분리되어 있음이 관측되었다. 이는 박막 증착중 가스의 압력, 기판의 온도와 같은 증착 조건과 관계 있는

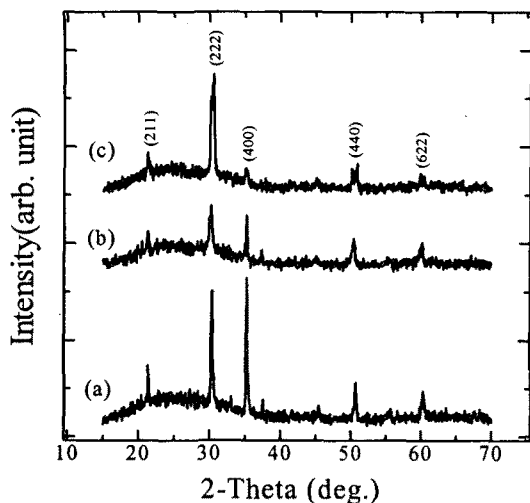


그림 2. 제작 방법과 증착 조건이 다른 ITO박막 (a), (b), (c)의 XRD pattern.

Fig 2. XRD spectra of the ITO films deposited under different conditions.

고유의 stress에 의한 것으로 박막의 구조와 격자상수를 변화 시키는 것으로 알려져 있다[19-21]. 시료 (b)와(c)는 박막의 구조가 변한 것이며, 시료 (a)만이 구조 변화가 없음을 관측하였다. 전체적인 박막의 구조변화율이 작을수록 저항 값이 낮아졌다. 또한 In₂O₃의 (400) Peak의 intensity가 상대적으로 증가될수록 박막표면의 저항이 낮아지는 경향성을 관측하였다. 박막 표면의 거칠기, grain size와 표면저항과의 관계를 알기 위하여 AFM과 SEM을 이용하여 표면을 관찰하였다.

그림 3은 ITO박막의 평면 AFM image와 표면 거칠기 data이다. 평면 AFM image에서 (c)의 grain size가 가장 크고 (a)와 (b)의 grain size는 상대적으로 작게 관측되었다. 시료 (a)-(b)-(c)의 순서에 따라 rms(root-mean-square)값이 0.938 nm, 0.973 nm, 2.729 nm로 증가하였다. 시료 (a)와 (b)의 표면은 상대적으로 편평하였으며 시료 (c)의 표면이 매우 거칠게 나타났다. grain size가 크고, 표면이 거칠수록 박막의 표면 저항 값이 커짐을 관측하였다. 그림 4는 박막의 표면형태가 저항에 미치는 영향을 알아보기 위하여 나타낸 삼차원 AFM image와 SEM image(×90K)이다. AFM image로부터 (c)박막의 표면이 가장 거친 것을 알 수 있다. SEM image에서 볼 수 있듯이 시료 (a)는 상대적으로 편평한 표면특성을 나타내며, 시료 (c)는 표면이 매우 거칠

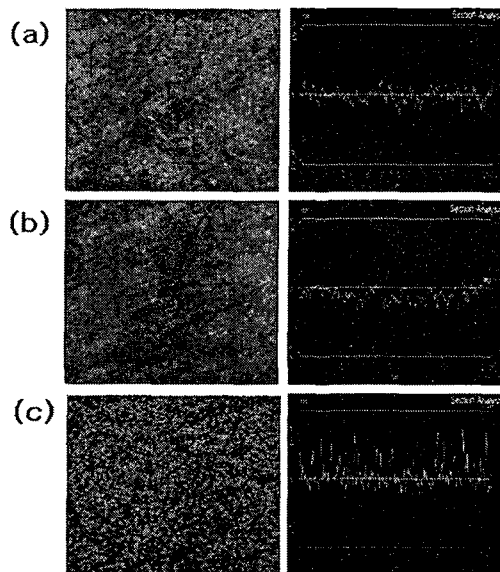


그림 3. 다른 조건 하에서 증착된 ITO의 AFM image와 표면 거칠기 data.

Fig 3. AFM image and Cross Section data of different ITO Films.

게 나타났다. 박막의 표면 저항은 결정구조, 표면의 거칠기, 표면의 형태와 관련이 있음을 관측하였다. (222), (400) peak의 intensity가 크고, peak의 결정성 정도가 좋으며, grain size가 작고, 표면이 매끄러울수록 박막의 저항이 낮아지는 것을 관측하였다. 즉, 표면의 거칠기 정도가 박막의 표면 저항값을 결정짓는 중요한 요소임이 관측되었다[22]. 이런 박막의 특성을 비접촉·비파괴 방식인 NSMM을 사용하여 얻은 반사계수(s_{11})를 통하여 박막의 저항 값과 비교해 보았다.

그림 5는 비접촉방식인 NSMM을 사용하여 얻은 세가지 박막의 s_{11} graph이다. s_{11} 은, V_1^- / V_1^+ 로 표현되는 파라미터로서, 입력신호 전압 대 출력 신호의 전압의 비를 나타내고 이를 바탕으로 박막의 표면특성과 저항을 알 수 있다. 공기중의 전기저항은 이론적으로 무한대이므로 입력된 microwave신호가 반사되지 않으므로 낮게 나타나고 이를 측정 기준이 되는 반사계수 값으로 나타났다. 백금(Pt)은 저항이 낮은 금속이므로 표면에 microwave가 입력되면 대부분이 반사되어 출력신호로 표시되므로 상대적으로 높은 반사계수 값을 나타낸다.

ITO박막의 경우 Pt보다는 저항이 크지만, 공기에 비해서는 낮은 저항을 갖고 있음을 알 수 있다. 삼

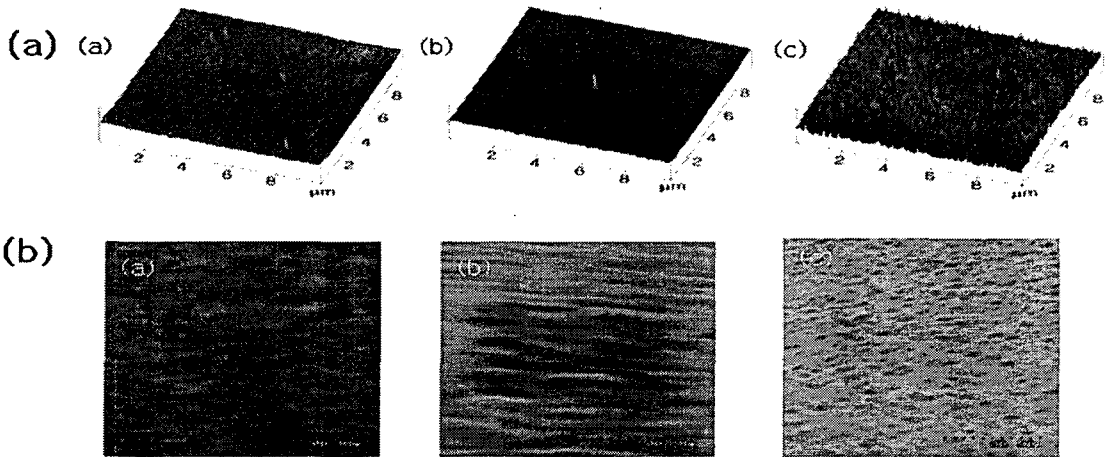


그림 4. ITO박막의 (a) 삼차원 AFM image와 (b) SEM image.

Fig 4. (a)Three dimensional AFM image and (b) SEM image of ITO thin film.

입된 그림에서 알 수 있듯이, 시료 (a)의 반사계수 값이 가장 크므로 시료 (a)가 가장 낮은 저항을 갖고 있으며, 시료 (c)가 상대적으로 큰 저항을 갖고 있음을 관측하였다. 이는 4단자 법으로 측정하여 얻은 박막의 저항 값과 정확히 비례한다. 전기저항과 관련된 결정특성과 표면특성을 비접촉·비파괴 방식인 NSMM을 사용하여 ITO박막의 특성을 예측할 수 있었다.

4. 결 론

ITO박막의 표면 거칠기와 전기적 저항은 OLED와 LCD같은 디스플레이 응용분야에서는 매우 중요한 요소가 된다. 낮은 전기저항을 갖는 ITO기판이 절실하 요구되고 있다. 본 연구에서는 x-ray diffraction의 결과와 SEM과 AFM의 image로부터 박막의 표면특성을 살펴보았다. 이들의 결과로부터 알 수 있는 박막의 구조적 특성과 표면 특성을 우리는 비접촉·비파괴 방식인 근접장 마이크로파 현미경(NSMM)의 반사계수(S_{11})값을 통하여 ITO박막의 구조적 특성과 표면특성들을 예측할 수 있었다. 많은 응용분야에서 사용되고 있는 ITO기판의 특성파악을 NSMM을 통하여 비파괴·비접촉 방식으로 알아낼 수 있었다.

감사의 글

본 논문은 2002년 한국학술진흥 재단의 지원에 의하여 연구되었음. KRF-2002-015-CS0018.

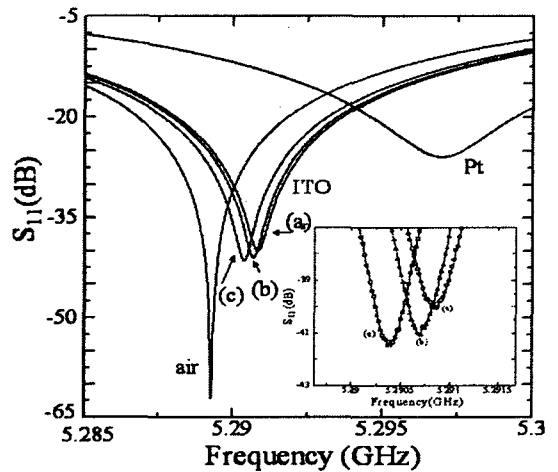


그림 5. ITO박막 (a), (b), (c)의 반사계수(S_{11}) 그래프.

Fig 5. Reflection coefficient(S_{11}) of ITO thin films for sample (a), (b) and (c).

참고 문헌

- [1] I-Min Chan, Franklin C. Hong. Thin Solid Films 450 (2004) 304.
- [2] C. W. Tang and S. A. Van Slyke, Appl. Phys. Lett. 51, 913 (1987).
- [3] J. Yu, Zhaos, Q. Zhaos, G. Wang, , Mater.

- Chem. Phys. 68 (2001) 253.
- [4] T. Ishihara, K. Matsuzawa, M. Takayanagi, S. Takagi, *Jpn. J. Appl. Phys.* 41(2002) 2353.
- [5] M. Kamei, Y. Shigesato, S. Takaki, *Thin Solid Films* 259 (1995) 38.
- [6] K. Zhang, F. Zhub, C. Huan, A. Wee, *Thin solid Films* 376 (2000) 255.
- [7] Y. Suzuki, F. Niino, K. Katoh, *J. Non-Cryst. Solids* 218 (1997) 30.
- [8] H. Kim, C.M. Gilmore, A. Pique, J.S. Horwitz, H. Mattoussi, H. Murata, Z.H. Kafafi, D.B. Chrisey, *J. Appl. Phys.* 76 (2000) 259.
- [9] J. Kanazawa, T. Haranoh, K. Matsumoto, *Vacuum* 41 (1990) 1463.
- [10] T. Minami, H. Sonohara, T. Kakumu, S. Takata, *Thin Solid Films* 270 (1995) 37.
- [11] J. Kim, S. Hong, W. Park, K. Lee, *Sae Mulli(The Korean Physical Society) Vol42. Num6*, 281 (2001).
- [12] S. Hong J. Kim, W Park, and K. Lee, *Appl. Phys. Lett.* 80. 524 (2002). [13] J. Kim, K. Lee, B. Friedman, and D. Cha. *Appl. Phys. Letts.* 83, 1032 (2003).
- [14] J. Kim, M.Kim, H. Kim, D. Song, K. Lee, and B. Friedman. *Appl. Phys. Letts.* 83, 1026-1028 (2003).
- [15] M.Kim, S.Kim, J. Kim, K. Lee, J. Kim, J. Lee *Rev. Sci. Instrum.* 74, 3675-3678 (2003).
- [16] M.Kim, K. Lee *Rev. Sci. Instrum.* (2003).
- [17] H. Kim, C.M. Gilmore, A. Pique., J.S. Horwiz, H. Murata, Z.H. Kafafi, D.B. Chrisey, *J. Appl. Phys.* 86 (1999) 6451.
- [18] H. Kim, J.S. Horwiz, G. Kushto, A. Pique, Z.H. Kafafi, C.M. Gilmore, D.B. Chrisey, *J. Appl. Phys.* 88 (2000) 6021.
- [19] H. Izumi, F.O. Adurodija, T. Kaneyoshi, T. Ishihara, H. Yoshioka, M. Motoyama, *J. Appl. Phys.* 91 (2002) 1213.
- [20] F.O. Adurodija, H. Izumi, T. Ishihara, H. Yoshioka, M. Motoyama, *J. Mater. Sci.* 12 (2001) 57.
- [21] J. Michler, M. Mermoux, Y. Kaenel, A. Haouni, "G. Lucazeau, E. Blank, *Thin Solid Films* 357 (1999) 189.
- [22] J. Kim, F. Cacialli, R. Friend, *Thin Solid Film* 445 (2003) 358.